

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2003-308975

(P2003-308975A)

(43)公開日 平成15年10月31日 (2003.10.31)

(51)Int.Cl.  
H 05 B 33/12  
33/10  
33/14

識別記号

F I  
H 05 B 33/12  
33/10  
33/14

マーク (参考)  
E 3K007  
A

審査請求 有 請求項の数3 OL (全15頁)

(21)出願番号 特願2002-112529(P2002-112529)

(22)出願日 平成14年4月15日 (2002.4.15)

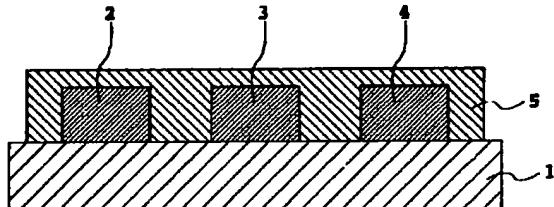
(71)出願人 000005234  
富士電機株式会社  
神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号  
(72)発明者 卷潤一  
神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号  
富士電機株式会社内  
(72)発明者 川口剛司  
神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号  
富士電機株式会社内  
(74)代理人 100077481  
弁理士 谷義一 (外2名)  
Fターム(参考) 3K007 AB04 AB08 AB11 AB12 AB13  
BB06 DB03 FA01 FA02 FA03

(54)【発明の名称】色変換フィルタ基板および色変換カラー有機EL素子の製造方法

(57)【要約】

【課題】 本発明は、膜厚を薄く抑え、且つ、十分な表面平滑性を備えたオーバーコート層を有する、長期にわたって安定した発光特性を維持できる色変換方式のカラー有機EL素子を提供することを目的とする。

【解決手段】 本発明のカラー有機EL素子の製造方法は、色変換フィルタ層を透明な支持基板上に形成する工程と、色変換フィルタ層および透明な支持基板上にオーバーコート層を形成する工程とを少なくとも具備し、該オーバーコート層を形成する工程が、仮基板上に配置された、表面が十分に平坦な剥離層上にオーバーコート層を形成し、この仮基板を剥離層およびオーバーコート層とともに該透明な支持基板上の色変換フィルタ層上に圧着し、この圧着の段階で200°C以下の温度でオーバーコート層を硬化させた後、剥離層を除去することで色変換フィルタ層上にオーバーコート層を転写する工程であることを特徴とする。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 透明な支持基板と、单一または複数種類の色変換フィルタ層と、該色変換フィルタ層を被覆し、ガスバリア性を有し、且つ表面が平滑化された単層または異種の材料で構成される複数の層からなる透明なオーバーコート層を少なくとも備える色変換フィルタ基板の製造方法において、

該製造方法が、色変換フィルタ層を透明な支持基板上に形成する工程と、色変換フィルタ層および透明な支持基板上にオーバーコート層を形成する工程とを少なくとも備えし、

該オーバーコート層を形成する工程が、仮基板上に配置された、表面が十分に平坦な剥離層上にオーバーコート層を形成し、この仮基板を剥離層およびオーバーコート層とともに該透明な支持基板上の色変換フィルタ層上に圧着し、この圧着の段階で200°C以下の温度でオーバーコート層を硬化させた後、剥離層を除去することで色変換フィルタ層上にオーバーコート層を転写する工程であることを特徴とする色変換フィルタ基板の製造方法。

【請求項2】 透明な支持基板と、单一または複数種類の色変換フィルタ層と、該色変換フィルタ層を被覆し、ガスバリア性を有し、且つ表面が平滑化された単層または異種材料で構成される複数の層からなる透明なオーバーコート層を少なくとも備える色変換フィルタ基板、並びに、少なくとも透明電極層と、有機発光層と、第二電極層とを、該色変換フィルタ基板上に順次積層したカラー有機EL素子の製造方法において、該製造方法が、色変換フィルタ層を透明な支持基板上に形成する工程と、色変換フィルタ層および透明な支持基板上にオーバーコート層を形成する工程と、透明電極層、有機発光層および第二電極層を順次積層する工程とを少なくとも備えし、

該オーバーコート層を形成する工程が、仮基板上に配置された、表面が十分に平坦な剥離層上にオーバーコート層を形成し、この仮基板を剥離層およびオーバーコート層とともに該透明な支持基板上の色変換フィルタ層上に圧着し、この圧着の段階で200°C以下の温度でオーバーコート層を硬化させた後、剥離層を除去することで色変換フィルタ層上にオーバーコート層を転写する工程であることを特徴とするカラー有機EL素子の製造方法。

【請求項3】 基板上にソースおよびドレインからなる薄膜トランジスタと、薄膜トランジスタの上部にソースまたはドレインに接続された導電性薄膜材料からなる第一電極、有機発光層、および第二電極を積層した有機EL発光素子を備えた有機EL発光素子基板と、

透明な支持基板と、单一または複数種類の色変換フィルタ層と、該色変換フィルタ層を被覆し、ガスバリア性を有し、且つ表面が平滑化された単層もしくは異種材料で構成される複数の層からなる透明なオーバーコート層を少なくとも備える色変換フィルタ基板とを、

オーバーコート層と前記有機EL発光素子の第二電極を対向して貼り合わせたカラー有機EL素子の製造方法において、

該製造方法が、該有機EL発光素子基板を形成する工程と、該色変換フィルタ層および透明基板上にオーバーコート層を形成する工程と、オーバーコート層と前記有機EL発光素子の第二電極を対向して貼り合わせる工程とを少なくとも備えし、

該オーバーコート層を形成する工程が、仮基板上に配置された、表面が十分に平坦な剥離層上にオーバーコート層を形成し、この仮基板を剥離層およびオーバーコート層とともに該透明な支持基板上の色変換フィルタ層上に圧着し、この圧着の段階で200°C以下の温度でオーバーコート層を硬化させた後、剥離層を除去することで色変換フィルタ層上にオーバーコート層を転写する工程であることを特徴とするカラー有機EL素子の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は高精細で、耐環境性および生産性に優れたカラーフィルタ基板および該カラーフィルタ基板を具備するカラー有機EL素子に関する。特に本発明は、イメージセンサ、パーソナルコンピュータ、ワードプロセッサ、テレビ、ファクシミリ、オーディオ、ビデオ、カーナビゲーション、電機卓上計算機、電話機、携帯端末機並びに産業用の計器類などの表示に使用できるカラーフィルタ基板および該カラーフィルタを具備するカラー有機EL素子に関する。本発明のカラー有機EL素子は、特に、上記カラーフィルタ基板を具備する色変換方式を用いた上記機器に使用可能で、

30 カラー表示が可能なカラー有機EL素子である。

## 【0002】

【従来の技術】 有機エレクトロルミネンス(以下、有機ELと称する。)素子は低電圧で高い電流密度が実現できるため、無機EL素子やLEDに比べて高い発光輝度と発光効率が期待できる。

【0003】 有機EL素子を用いた表示素子は、(1)高輝度および高コントラストであること、(2)低電圧駆動が可能で、高い発光効率を有すること、(3)高解像度であること、(4)視野が広いこと、(5)応答速度が速いこと、(6)微細化およびカラー化が容易であること、(7)軽くかつ薄くできること、などの優れた特徴を持っている。このような点から有機EL素子を用いた表示素子に対しては、「美・軽・薄・優」の優れた特性を有するフラットパネル素子への応用が期待されている。

【0004】 1980年の後半に、液晶表示素子などに比べて、視野角依存性が小さいこと、および、高速な応答性を有することなどを特徴とした素子がTangらによって報告( *App. Phys. Lett.* , 51, 50 913 (1987) )された。この素子は、有機分子の

薄膜積層構造を有する有機エレクトロルミネセンスを利用した表示素子であり、印加電圧10Vにおいて1000cd/m<sup>2</sup>以上の高輝度が得られる有機EL素子である。この報告の後、有機EL素子の実用化に向けての研究が活発に行われている。また、有機高分子材料を用いた同様の素子も活発に開発が進められている。

【0005】また、近年、薄膜トランジスタ(TFT)を用いる表示装置も考案されている。このTFTによる駆動方式では、TFTが形成されている基板側に光を取り出す方式が知られている。ただし、この方式では、配線部分の光の遮光効果により、開口率が上がらないことがある。このため、最近ではTFTが形成されている基板とは反対側に光を取り出す方式、いわゆるトップエミッション方式が考案されている。

【0006】有機EL素子におけるTFT駆動方式を用いたトップエミッション方式の利点は、TFTの上側に発光部を持つために、TFTが形成される部分を基板全体に拡張できる点である。これは、TFTが形成されている基板側に光を取り出す方式と大きく異なる。すなわち、TFTが形成されている基板側に光を取り出す方式は、TFTが形成されている基板側に光を透過させなければならないので、遮光部となるTFT部分の形成領域を可能な限り小さくしなければならない。このため、上述のように、開口率が上がらないことがあるのである。

【0007】一方、有機EL素子を用いた、素子のカラ一化の方法として、色変換方式が開示されている(特開平3-152897号公報、特開平5-258860号公報等)。この方式は、有機EL発光素子から発せられる光を吸収して可視光領域の蛍光を発光する蛍光材料をフィルタに用いる。この色変換方式では、有機EL素子の発光色は白色に限定されないため、より輝度の高い有機EL発光素子を光源に使用することができる。例えば、青色光を発光する有機EL発光素子を用いた色変換方式(特開平3-152897号公報、特開平8-286033号公報、特開平9-208944号公報)では、青色光を緑色光や赤色光に波長変換している。このような蛍光色素を含む蛍光変換層を高精細にパターンニングすれば、有機EL発光素子の近紫外光から可視光のような弱いエネルギー線を用いてもフルカラーの発光型素子が構築できる。上記のトップエミッション方式においても、上記色変換フィルタを用いることによりカラー有機EL素子を構築することができる。

【0008】さらに、カラー有機EL素子の実用上の重要な課題は、精細なカラー表示機能を有すると共に、色再現性を含め、長期的な安定性を有することである(機能材料、第18巻第2号、96頁を参照されたい)。しかしながら、カラー有機EL素子は、一定期間の駆動により電流-輝度特性が著しく低下する。

【0009】この発光特性の低下の代表的な原因は、ダ

ークスポットの成長である。このダークスポットとは、発光欠陥点のことである。駆動時および保存中に酸化が進むとダークスポットの成長が進み、欠陥が発光面全体に広がる。

【0010】このダークスポットの発生原因は、有機EL素子中の酸素または水分により、この素子を構成する材料が酸化または凝集することにあると考えられている。このダークスポットの成長は、通電中はもちろん、保存中にも進行し、特に(1)素子の周囲に存在する酸素または水分により加速され、(2)有機積層膜中に吸着物として存在する酸素または水分に影響され、および(3)素子作製時の部品に吸着している水分、または製造時等における水分の侵入にも影響されると考えられている。

【0011】このように、ダークスポットの発生に関しては、上述のように有機EL素子中の酸素および水が原因となっていると考えられているが、例えば、樹脂中に色変換用の色素を混合した色変換フィルタでは、水分等に関して次のような問題点がある。すなわち、色変換フィルタでは、混合される色素の熱安定性の関係から200°Cを超える温度での乾燥が行えない。したがって、色素などに含有されている水分が混入されたままの状態となることがある。また、色変換フィルタを用いた有機EL素子では、色変換フィルタを構築する際のパターン形成工程において、色変換フィルタ内に水分が混入される場合があり、水分が保持された状態で色変換フィルタが形成される可能性がある。色変換フィルタ内に保持された水分は、有機EL素子などの保存または駆動中に、素子中に設けられている保護層などを通じて、有機EL発光素子に達し、ダークスポットの成長を促進する。

【0012】上述の色変換フィルタを用いる有機EL素子において、色変換フィルタ中に含まれる水分に対処する方法として、ガスバリア性を有したオーバーコート層を配設する方法がある。

【0013】ガスバリア性を有したオーバーコート層を形成する例としては、例えば、高分子材料からなる平坦化層と無機酸化物または無機酸化物層を配設することによりオーバーコート層を形成すること(特開平8-279394号公報、特開平11-26156号公報)、熱硬化性樹脂または紫外線硬化性樹脂と酸化ケイ素を含有するバリア層とを積層することによりオーバーコート層を形成すること(特開2001-60495号公報)、ハードコート層付フィルムを結合剤で接着することによりオーバーコート層を形成すること(特開平11-121164号公報)、高分子材料で保護層およびハードコート層を形成すること(特開2000-182780号公報、特開平11-219786号公報)、などが開示されている。

【0014】また、特開平5-325646号公報には、ガスバリア性の高いオーバーコート層を得るもので

はないが、基板部材と、該基板部材上に形成された透明なオーバーコート層と、該オーバーコート層上に形成された導電性の超微粒子を含む透明導電膜を、基板上に転写することが開示されている。この発明は、多孔性の透明基板中の空隙をオーバーコート層により充填し、光学特性を改善することを目的としている。

【0015】さらに、オーバーコート層の表面は、色変換フィルタからの水分が流出するようなピンホール等が存在しないことが重要である。さらに、オーバーコート層上に透明電極、有機発光層、陰極等を積層する場合、これらの層に水分の経路となるような欠陥を生じさせないことも必要であり、このためには、オーバーコート層は十分に平坦であることが要求される。

【0016】この他、TFTを用いるカラー有機ELディスプレイに関しては、基板上にTFTを設け、さらにその上層に有機EL発光素子、蛍光変換層、およびこれらを封止する透明基板を具備したカラー有機ELディスプレイがあるが、このような表示装置では、有機EL発光素子基板が、蛍光変換層および/またはカラーフィルタ層を有する透明板と接触しないように構成する必要がある。このために、例えば特開平11-297477号公報には、ギャップ調整用の支柱を設けることが提案されている。このような表示装置のうち、トップエミッション方式を採用するものは、透明基板、すなわちオーバーコート層の表面が十分に平坦であることが求められる。

【0017】このように、カラー表示装置には、種々のタイプがあるが、いずれの場合であっても、オーバーコート層が各色変換フィルタ間の隙間を完全に埋め込むとともに、オーバーコート層は薄く、且つ、その表面が十分に平滑化されている必要がある。

【0018】また、色変換フィルタは、色素の熱安定性の問題から、200°Cを超える加工温度を用いることができないため、加工をする際にも制限があった。

#### 【0019】

【発明が解決しようとする課題】オーバーコート層を平滑化するには、オーバーコート層は厚い方が良いが、オーバーコート層を厚くすると視野角特性が低下する問題が生じる。従って、オーバーコート層は膜厚を薄く抑え、且つ、十分な平坦性を確保することが重要である。平坦性を確保することで、水分の拡散などを防止することも重要である。

【0020】しかし、オーバーコート層を色変換フィルタ上にスピンドル法などで直接形成する場合、膜厚を薄く抑えようするとカバレッジの問題で表面の平滑性が損なわれる。

【0021】また、上記のように、使用される色素の関係から、色変換フィルタ上に形成されるすべての層は200°C未満の温度で形成する必要があった。このため、オーバーコート層の材料も限定されていた。

【0022】本発明は、上記観点から成された発明であり、ダークスポットの発生による有機EL素子の短寿命を克服することを目的とする。すなわち、本発明の目的は、膜厚を薄く抑え、且つ、十分な表面平滑性を備えたオーバーコート層を有し、長期にわたって安定した発光特性を維持できる色変換方式のカラー有機EL素子を効率よく形成する方法を提供することである。

#### 【0023】

【課題を解決するための手段】上記目的は、以下に示す本発明により解決される。

【0024】すなわち、本発明の第一は、色変換フィルタ基板の製造方法に関する。この製造方法は、色変換フィルタ層を透明な基板上に形成する工程と、色変換フィルタ層および透明な支持基板上にオーバーコート層を形成する工程とを少なくとも具備し、該オーバーコート層を形成する工程が、仮基板上に配置された表面が十分に平坦な剥離層にオーバーコート層を形成し、この仮基板を剥離層およびオーバーコート層とともに該透明な支持基板上の色変換フィルタ層上に圧着し、この圧着の段階で200°C以下の温度でオーバーコート層を硬化させた後、剥離層を除去することで色変換フィルタ層上にオーバーコート層を転写する工程であることを特徴とする。

【0025】本発明の第二は、上記カラー有機EL素子の製造方法に関する。この製造方法の第一の実施形態は、透明な支持基板と、単一または複数種類の色変換フィルタ層と、該色変換フィルタ層を被覆し、ガスバリア性を有し、且つ表面が平滑化された单層または異種材料で構成される複数の層からなる透明なオーバーコート層を少なくとも備える色変換フィルタ基板、並びに、少なくとも透明電極層と、有機発光層と、第二電極層とを、該色変換フィルタ基板上に順次積層したカラー有機EL素子の製造方法に関する。この製造方法は、色変換フィルタ層および透明な支持基板上にオーバーコート層を形成する工程と、透明電極層、有機発光層および第二電極層を順次積層する工程とを少なくとも具備し、該オーバーコート層を形成する工程が、仮基板上に配置された表面が十分に平坦な剥離層にオーバーコート層を形成し、この仮基板を剥離層およびオーバーコート層とともに該透明な支持基板上の色変換フィルタ層上に圧着し、この圧着の段階で200°C以下の温度でオーバーコート層を硬化させた後、剥離層を除去することで色変換フィルタ層上にオーバーコート層を転写する工程であることを特徴とする。

【0026】カラー有機EL素子の製造方法の第二の実施形態は、基板上にソースおよびドレインからなる薄膜トランジスタと、薄膜トランジスタの上部にソースまたはドレインに接続された導電性薄膜材料からなる第一電極、有機発光層および第二電極を積層した有機EL発光

素子を備えた有機EL発光素子基板、並びに、透明な支持基板と、单一または複数種類の色変換フィルタ層と、該色変換フィルタ層を被覆し、ガスバリア性を有し、且つ表面が平滑化された单層もしくは異種材料で構成される複数の層からなる透明なオーバーコート層を少なくとも備える色変換フィルタ基板を、オーバーコート層と有機EL発光素子の第二電極とを対向するように貼り合わせたカラー有機EL素子の製造方法である。この製造方法は、有機EL発光素子基板を形成する工程と、色変換フィルタ層および透明基板上にオーバーコート層を形成する工程と、オーバーコート層と有機EL発光素子の第二電極を対向して貼り合わせる工程とを少なくとも具備し、オーバーコート層を形成する工程が、仮基板上に配置された表面が十分に平坦な剥離層上にオーバーコート層を形成し、この仮基板を剥離層およびオーバーコート層とともに該透明な支持基板上の色変換フィルタ層上に圧着し、この圧着の段階で200°C以下の温度でオーバーコート層を硬化させた後、剥離層を除去することで色変換フィルタ層上にオーバーコート層を転写する工程であることを特徴とする。

## 【0027】

【発明の実施の形態】以下に本発明を説明する。以下の説明では、適宜図面を参照して本発明を説明するが、これらの説明はあくまで例示であり、本発明はこれらに限定されない。

【0028】本発明の第一は、色変換フィルタの製造方法に関する。

【0029】本発明の製造方法は、色変換フィルタ層を透明な基板上に形成する工程と、該色変換フィルタ層および透明な支持基板上にオーバーコート層を形成する工程とを少なくとも具備し、該オーバーコート層を形成する工程が、仮基板上に配置された、表面が十分に平坦な剥離層上にオーバーコート層を形成し、この仮基板を剥離層およびオーバーコート層とともに上記の透明な支持基板上の色変換フィルタ層上に圧着し、この圧着の段階で200°C以下の温度でオーバーコート層を硬化した後、剥離層を除去することで色変換フィルタ層上にオーバーコート層を転写する工程であることを特徴とする。

【0030】本発明は、色変換フィルタ層を透明な基板上に形成する工程を含む。また、本発明では、仮基板上に剥離層を介してオーバーコート層を形成する工程を含む。

【0031】まず、本発明の製造方法に係る色変換フィルタ基板の構造の一例を、図1により説明する。

【0032】図1は透明な支持基板1上に赤、緑、青の染料または顔料からなる色変換フィルタ層(赤色変換フィルタ層2、緑色変換フィルタ層3、青色変換フィルタ層4)を形成し、後に、オーバーコート層5を形成した、色変換フィルタ基板の概略断面図である。

## 【0033】本発明の色変換フィルタ基板は、オーバー

コート層5を有し、このオーバーコート層は、透明な支持基板側とは反対側の表面が平滑であり、且つ、色変換フィルタ層内に含まれる水分の拡散などが起こらないよう、ガスバリア性の高い、十分な密封性を有していることを特徴とする。

【0034】本発明の製造方法を以下に説明する。

A) 色変換フィルタ層を透明な基板上に形成する工程  
本発明では、染料または顔料を含有したマトリックス樹脂を、例えばコーニング社製のガラス(ノンアルカリガラスである、コーニング1737ガラス)のような透明基板上に、スピンドル法などを用いて塗布し、フォトリソグラフィー法などによりパターンニングを行うことにより色変換フィルタ層を形成する。

【0035】以下に色変換フィルタ基板の製造に使用される各要素について説明する。

## 【0036】1. 色変換フィルタ層

本明細書において、色変換フィルタ層とは、以下に説明する有機蛍光色素をマトリックス樹脂に含有させて形成された層(本明細書において色変換層と称する)と、こ

の色変換層のみでは十分な色純度が得られない場合に設けられるカラーフィルタ層を含めた層を意味する。なお、色変換フィルタ層において、該カラーフィルタ層は任意構成要素である。また、本発明において、青色ないし青緑色領域の光を発光する有機EL発光素子を発光源として用いる場合には、青色フィルタのみを色変換フィルタ層として用いることができる。以下に、色変換フィルタ層に用いられる材料等について説明する。以下の説明では、青色ないし青緑色領域の光を発する有機EL発光素子を発光源として用いる場合を例に取り、各材料を説明するが、本発明はこれに限定されない。

## 【0037】1) 有機蛍光色素

本発明において、有機蛍光色素は、有機EL発光素子から発せられる近紫外領域ないし可視領域の光、特に青色ないし青緑色領域の光を吸収して、この発光素子とは異なる波長の可視光を発するものであれば特に限定されない。本発明では、少なくとも赤色領域の蛍光を発する蛍光色素の一種類以上が用いられ、緑色領域の蛍光を発する蛍光色素の一種以上と組み合わせることが好ましい。これは以下の理由による。有機EL発光素子としては、青色ないし青緑色領域の光を発光するものが得やすいが、これを単なる赤色フィルタに通して赤色領域の光に変更しようとすると、元々赤色領域の波長の光が少ないため、極めて暗い出力光になってしまう。したがって、十分な強度の出力を持った赤色領域の光を得るためにには、有機EL発光素子からの光を蛍光色素によって一旦吸収させ、赤色領域の光に変換させが必要となる。

【0038】一方、緑色領域の光は、赤色領域の光と同様に、有機EL発光素子からの光を別の蛍光色素によって一旦吸収させ、赤色領域の光に変換させることが必要となる。

【0039】一方、緑色領域の光は、赤色領域の光と同様に、有機EL発光素子からの光を別の蛍光色素によっ

は、有機EL発光素子の発光が緑色領域の光を十分に含むならば、この発光素子からの光を単に緑色フィルタを通して出力してもよい。

【0039】また、青色領域の光に関しては、有機EL発光素子からの光を単なる青色フィルタに通して出力させることが可能である。

【0040】有機EL発光素子から発せられる青色から青緑色領域の光を吸収して、赤色領域の蛍光を発する蛍光色素には、例えば以下のような有機蛍光色素がある。すなわち、ローダミンB、ローダミン6G、ローダミン3B、ローダミン101、ローダミン110、スルホローダミン、ペーシックバイオレット11、ペーシックレッド2などのローダミン系色素、シアニン系色素、1-エチル-2-[4-(p-ジメチルアミノフェニル)-13-ブタジエニル]-ピリジウム-バーコロレート(ピリジン1)などのピリジン系色素、あるいはオキサジン系色素などである。さらに、各種染料(直接染料、酸性染料、塩基性染料、分散染料など)も所望の蛍光を発することができれば使用することができる。

【0041】有機EL発光素子から発せられる青色ないし青緑色領域の光を吸収して、緑色領域の蛍光を発する蛍光色素には、例えば以下のような有機蛍光色素がある。すなわち、3-(2-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン(クマリン6)、3-(2'-ベンゾイミダゾリル)-7-N,N-ジエチルアミノクマリン(クマリン7)、3-(2'-N-メチルベンゾイミダゾリル)-7-N,N-ジエチルアミノクマリン(クマリン30)、2,3,5,6-1H,4H-テトラヒドロ-8-トリフルオロメチルキノリジン(9,9a,1-gh)クマリン(クマリン153)などのクマリン系色素、または、クマリン色素系染料であるペーシックイエロー-51、さらにはソルベントイエロー-11、ソルベントイエロー-116などのナフタルイミド系色素などである。さらに、各種染料(直接染料、酸性染料、塩基性染料、分散染料など)も所望の蛍光を発することができれば使用することができる。

【0042】なお、本発明に用いることができる有機蛍光色素を、ポリメタクリル酸エステル、ポリ塩化ビニル、塩化ビニル-酢酸ビニル共重合樹脂、アルキッド樹脂、芳香族スルホンアミド樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、ベンゾグアニミン樹脂およびこれらの樹脂混合物などに予め練り込んで顔料化して、有機蛍光顔料としてもよい。また、これらの有機蛍光色素や有機蛍光顔料(本明細書中で、前記2つを合わせて有機蛍光色素と総称する)は単独で用いてもよく、蛍光の色相を調整するために二種以上を組み合わせて用いてもよい。本発明に用いる有機蛍光色素は、色変換フィルタ層に対して、この変換フィルタ層の重量を基準として0.01~5重量%、より好ましくは0.1~2重量%の量で含有される。有機蛍光色素の含有量が0.01重量%未満の場合には、

10

10

十分な波長変換を行うことができず、その含有量が5%を超える場合には、濃度消光等の効果により色変換効率の低下が起こる。

【0043】本発明では、色変換フィルタ層は、線幅、ピッチ、膜厚などは、所望のカラー有機EL素子により異なるので、特に制限されないが、例えば、線幅は0.1mm、ピッチは0.11mmとすることができます。また、膜厚は5μm以上、好ましくは8から15μmとすることができる。

【0044】さらに、本発明では、基板上にコントラストを出すための遮光膜を設けることができる。具体的には、例えば図1の色変換フィルタ層(2,3,4)の間の、色変換フィルタ層が設けられていない領域に、遮光膜を設けることができる。この遮光膜の厚さは、1から2μmであることが好ましい。

#### 【0045】2) マトリックス樹脂

次に、本発明の色変換フィルタ層のうち、色変換層に用いられるマトリックス樹脂について説明する。マトリックス樹脂は、光硬化性樹脂または光熱併用型の硬化性樹脂からなる。これを、光および/または熱処理して、ラジカル種やイオン種を発生させて重合または架橋させ、樹脂を不溶不融化させて、色変換層を形成する。

【0046】光硬化性または光熱併用型の硬化性樹脂には、(1)アクリル基やメタクリル基を複数有するアクリル系多官能性モノマーおよびオリゴマー、(2)ポリビニル桂皮酸エステル、(3)鎖状または環状オレフィン、(4)エポキシ基を有するモノマーなどが含まれる。

【0047】これらの硬化性樹脂は、例えば以下のような組成物として使用され、基板上に塗布された後、バターンニングされる。例えば、(1)の硬化性樹脂は、光または熱重合開始剤と混合され、この組成物を塗布した後、光または熱処理して、光ラジカルや熱ラジカルを発生させて重合させる。また、(2)の硬化性樹脂は、増感剤と混合され、この組成物を塗布した後、光または熱処理により二量化させて架橋する。(3)の硬化性樹脂は、ビスアジドと混合され、この組成物を塗布した後、光または熱処理によりナイトレンを発生させ、オレフィンと架橋させる。(4)の硬化剤は、光酸発生剤と混合され、この組成物を塗布した後、光または熱処理により、酸(カチオン)を発生させて重合させる。本発明では、特に(1)の光硬化性または光熱併用型硬化性樹脂からなる組成物が高精細でバターンニングが可能であり、耐溶剤性、耐熱性等の信頼性の面でも好ましい。

#### 【0048】3) 基板

本発明で使用しうる基板は、ガラスやプラスチックなどからなる絶縁性基板、または、半導電性や導電性基板に絶縁性の薄膜を形成した基板を用いることができる。これらの膜厚などのパラメータは、従来の値と同じである。

11

【0049】次に、各色変換フィルタ層の具体的な製造方法を説明する。以下の説明では、青色ないし青緑色領域の光を発する有機EL発光素子を発光源として用いる場合を例に取り、各材料を説明するが、本発明はこれに限定されない。

【0050】【青色フィルタ層の作製】青色フィルタ層の材料を透明な支持基板上に、スピンドルコート法などを用いて塗布し、フォトリソグラフィー法などによりパターンニングを実施することにより、青色フィルタ層のラインパターンを得ることができる。このラインパターンは、所望のカラー有機EL素子に応じて異なるが、例えば線幅0.1mm、ピッチ0.33mm、膜厚1.0μmとすることができます。

【0051】【緑色変換フィルタ層の作製】緑色変換用の蛍光色素を溶剤へ溶解させ、これに光重合性樹脂を加えて、硬化性樹脂組成物の溶液を得る。この溶液を、青色フィルタのラインパターンをすでに形成した、透明な支持基板上に、スピンドルコート法などを用いて塗布し、フォトリソグラフィー法などによりパターンニングを実施することにより、緑色変換フィルタ層のラインパターンを得ることができます。このラインパターンは、所望のカラー有機EL素子に応じて異なるが、例えば線幅0.1mm、ピッチ0.33mm、膜厚1.0μmとすることができます。

【0052】【赤色変換フィルタ層の作製】赤色変換用の蛍光色素を溶剤へ溶解させ、これに光重合性樹脂を加えて、硬化性樹脂組成物の溶液を得る。この溶液を、青色フィルタ層および緑色変換フィルタ層のラインパターンを形成した透明な支持基板上に、スピンドルコート法などを用いて塗布し、フォトリソグラフィー法などによりパターンニングを実施することにより、赤色変換フィルタ層を得る。このラインパターンは、所望のカラー有機EL素子に応じて異なるが、例えば線幅0.1mm、ピッチ0.33mm、膜厚1.0μmとすることができます。

【0053】また、本発明では、色変換フィルタ層は、各色ごとに分離したストライアバターンとして形成することができるが、各色ごとだけではなく、サブピクセルごとに分離させた構造とすることも好ましい。

【0054】さらに本発明では、色変換層に、カラーフィルタ層をさらに設けてよい。すなわち、上記の緑色または赤色の変換フィルタ層のみでは十分な色純度が得られない場合は、カラーフィルタ層を設けることができる。カラーフィルタ層の厚さは1~1.5μmが好ましい。また、このカラーフィルタ層は、上記青色フィルタ層と同様の方法で形成することができる。以上のようにして、本発明の色変換フィルタ層が得られる。

#### 【0055】B) オーバーコート層の形成工程

本発明のオーバーコート層の形成工程は、仮基板に形成した剥離層上に乾式法(スパッタ法、蒸着法、CVD法等)、湿式法(スピンドルコート法、ロールコート法、キャ

10

スト法等)等で形成したオーバーコート層を色変換フィルタ層に圧力等により密着させた後、エッチングにより剥離層を除去することで色変換フィルタ層上に転写させる方法を採用する。この方法は、従来、主に用いられてきた色変換フィルタ層上に乾式法、湿式法等で直接オーバーコート層を形成する方法とは異なる。転写法の利点は、例えば、色変換フィルタ層の熱安定性、耐薬品性等を考慮しなくてよいため、オーバーコート層の材料、形成条件の選択の幅が広がることである。また色変換フィルタ層とオーバーコート層を並行して作製できるのでリードタイムが短縮でき生産性が高いという利点もある。

【0056】なお、オーバーコート層の形成に使用される各材料に関しては後述する。

20

【0057】オーバーコート層の転写について図4~6を参照して説明する。図4~6は、本発明の色変換フィルタ層の製造工程を示す概略図である。図4はオーバーコート層の転写法(密着前)を示した色変換フィルタ層の断面概略図である。図5はオーバーコート層の転写法(密着後)を示した色変換フィルタ層の断面概略図である。図6はオーバーコート層の転写法(転写後)を示した色変換フィルタ層の断面概略図である。

30

【0058】図4に示されるように、本発明のオーバーコート層5は、仮基板12上に平坦で清浄な面を有する剥離層13を挟んで一旦形成された後、図5に示されるように透明な支持基板1上の色変換フィルタ層上に密着され、その後、図6に示されるように剥離層13を除去することにより色変換フィルタ層上に転写される。

【0059】剥離層は、例えば、真空蒸着、気相成長、あるいはスパッタ処理などにより形成することができる。

40

【0060】オーバーコート層と色変換フィルタ層を密着させる際の圧力は密着面に空隙を生じさせないため、および、色変換フィルタ層の形状を維持するために、0.2kgW/cm<sup>2</sup>以上、2.0kgW/cm<sup>2</sup>以下であることが好ましい。また、オーバーコート層と色変換フィルタ層を密着させる際の温度は、水分、有機溶剤等を残存させないために100°C以上が望ましい。また、蛍光色素の熱安定性の問題から200°C以下である必要がある。

50

【0061】剥離層のエッチングは、例えば、後述する材料のうち、アルミナなどはリン酸を主成分とする溶液で、二酸化シリコンはフッ酸を含むエッチング液で、InZnOは塩酸溶液で、それぞれ行うことができる。

【0062】複数の層の積層でオーバーコート層を形成することも可能である。その場合、仮基板上に複数の層を積層してから転写してもよく、一部の層を転写した後、残りの層をその上に積層してもよい。

50

【0063】また、オーバーコート層と色変換フィルタ層の間にオーバーコート層と同等の光学特性を有する接着層を設けてよい。

13

【0064】次にオーバーコート層の特徴、材料等について説明する。

#### 【0065】1) オーバーコート層

本発明に用いることができる平坦且つガスバリア性を有したオーバーコート層は可視域における透明性が高く(400~700 nmの範囲で透過率50%以上)、 $T_g$ が100°C以上であり、表面硬度が鉛筆硬度で2H以上である層である。本発明のオーバーコート層に使用できる材料は、基板上に表面が平坦となるように塗膜を形成でき、色変換フィルタ層の機能を低下させない材料であれば良い。例えば、イミド変性シリコーン樹脂(特開平5-134112号公報、特開平7-218717号公報、特開平7-306311号公報等)、無機金属化合物(TiO<sub>x</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、SiO<sub>2</sub>等)をアクリル樹脂、ポリイミド樹脂、シリコーン樹脂等の中に分散したもの(特開平5-119306号公報、特開平7-104114号公報等)、紫外線硬化型樹脂としてのエボキシ変性アクリレート樹脂(特開平7-48424号公報)、アクリレートモノマー/オリゴマー/ポリマーの反応性ビニル基を有する樹脂、レジスト樹脂(特開平6-300910号公報、特開平7-128519号公報、特開平8-279394号公報、特開平9-330793号公報等)、無機化合物のゾルゲル法を用いることができる材料(月刊ディスプレイ1997年、3巻、7号に記載、特開平8-27934号公報等)、フッ素系樹脂(特開平5-36475号公報、特開平9-330793号公報等)等の光硬化型樹脂および/または熱硬化型樹脂がある。

【0066】また、オーバーコート層には、電気絶縁性を有し、ガス、有機溶剤等に対するバリア性を有し、可視域における透明性が高く(400~700 nmの範囲で透過率50%以上)、陽極の成膜に耐えうる硬度として、好ましくは2H以上の膜硬度を有する無機材料も用いることができる。例えば、SiO<sub>x</sub>、SiN<sub>x</sub>、SiN<sub>x</sub>O<sub>y</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>x</sub>、Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、ZnO<sub>x</sub>等の無機酸化物、無機窒化物等が使用できる。

【0067】これらの材料は、本発明のオーバーコート層の形成に好適であり、オーバーコート層の表面の平坦性を損なうことなく、層を形成することができる。

【0068】上述のオーバーコート層は単層であっても、または、複数の層が積層された積層体でもよい。また、複数層からなる場合、各層は同じ材料でも異なる材料でもよいが、バリアー性を向上させるためには、異なる材料を用いることが好ましい。

【0069】このオーバーコート層を色変換方式のカラー有機EL素子に適用する際には、考慮しなければならない重要な要素が有る。すなわち、その要素とは、オーバーコート層の膜厚が表示性能、特に視野角特性に及ぼす影響である。本発明の色変換方式のカラー有機EL素子において、特に重要な視野角特性とは、素子に対して

14

見る角度を変えた際に生じる色の変化である。

【0070】オーバーコート層を厚くしすぎると、有機発光層で発生した光が、オーバーコート層を介して色変換フィルタ層に届くまでの光路長が長くなる。その結果、カラー有機EL素子を用いて構築されたカラー有機ELディスプレイを斜め方向から見ると、隣接する別の色の画素への光の漏れ(光学的クロストーク)が発生する。ディスプレイの表示性能として考えると、この光学的クロストークによる隣接色の発光量の比率が、本来の色の発光量に対して、十分小さいことが要求される。

【0071】この要求は、オーバーコート層の厚さと、画素の最小幅との関係を制限することに置き換えられる。公開技報2001-6083によればオーバーコート層の膜厚 $t_{PL}$ は、 $0 < t_{PL} < 0.1 W$ (Wは画素の最小幅)で示される範囲が好適とされている。

#### 【0072】2) 仮基板

仮基板は、例えば、シリコン、窒化シリコン、ガラス、石英、あるいはセラミックスなどの材料を用いることができる。

#### 【0073】3) 剥離層

剥離層は、例えば、クロム、ニッケル、タンタル、タンゲステンなどの金属材料、またはアルミナ、二酸化シリコンなどの絶縁材料、さらにはInZnOなどを用いる。

【0074】この剥離層の表面の平坦性は、オーバーコート層表面の平坦性に大きく影響するため、十分に平坦である必要がある。したがって、この表面の最大高低差は0.1 μm以下であることが好ましい。

【0075】次に第二の発明について説明する。本発明の第二は、カラー有機EL素子の製造方法に関する。

【0076】この製造方法の第一の実施形態は、例えば、図2に示されるカラー有機EL素子の製造方法である。この方法は、色変換フィルタ層を透明な支持基板上に形成する工程と、色変換フィルタ層および透明な支持基板上にオーバーコート層を形成する工程と、透明電極層、有機発光層および第二電極層を順次積層する工程とを少なくとも具備し、該オーバーコート層を形成する工程が、仮基板上に配置された、表面が十分に平坦な剥離層上にオーバーコート層を形成し、この仮基板を剥離層およびオーバーコート層とともに該透明な支持基板上の色変換フィルタ層上に圧着し、この圧着の段階で200°C以下の温度でオーバーコート層を硬化させた後、剥離層を除去することで色変換フィルタ層上にオーバーコート層を転写する工程であることを特徴とする色変換フィルタ基板の製造方法である。

【0077】この実施形態に係るのカラー有機EL素子は、例えば図2に示されるように、先に説明したようにして製造される色変換フィルタ層の上に、陽極6/正孔注入層7/正孔輸送層8/有機発光層9/電子注入層10/陰極11の6層を設けた構造を有する。ここで、図

2は、本発明のカラー有機EL素子の一例であるが、マルチカラーまたはフルカラーディスプレイとして使用するための複数の画素を有する有機EL素子の1つの画素に相当する部分の概略断面図である。

【0078】さらに、本発明の第二の実施形態は、TFT型のカラー有機EL素子の製造方法に関する。この方法は、有機EL発光素子基板を形成する工程と、色変換フィルタ層および透明基板上にオーバーコート層を形成する工程と、オーバーコート層と前記有機EL発光素子の第二電極を対向して貼り合わせる工程とを少なくとも具備し、該オーバーコート層を形成する工程が、仮基板上に配置された、表面が十分に平坦な剥離層上にオーバーコート層を形成し、この仮基板を剥離層およびオーバーコート層とともに該透明な支持基板上の色変換フィルタ層上に圧着し、この圧着の段階で200°C以下の温度でオーバーコート層を硬化させた後、剥離層を除去することで色変換フィルタ層上にオーバーコート層を転写する工程であることを特徴とするカラー有機EL素子の製造方法である。

【0079】この製造方法に係るカラー有機EL素子は、例えば図3に示されるように、基板14にボトムゲート型のTFTを形成し、陽極17にTFTのソースが接続されている構造を有する。この基板上に支柱16が、隣接する陽極間に設けられている。また、正孔注入層7、正孔輸送層8、有機発光層9および電子注入層10が陽極17の上に設けられる。さらに、透明な陰極18が設けられている。ここで、図3は、本発明のTFT型のカラー有機EL素子の一例であるが、マルチカラーまたはフルカラーディスプレイとして使用するための複数の画素を有するTFT型の有機EL素子の1つの画素に相当する部分の概略断面図である。

【0080】なお、第一の実施形態および第二の実施形態では、上記の色変換フィルタ基板を用いるので、色変換フィルタ基板に関する製造方法の説明、すなわち、色変換フィルタ層および透明な支持基板上にオーバーコート層を形成する工程などは、上記第一の発明と同様である。例えば、オーバーコート層の形成は以下の工程を採用する。

【0081】仮基板上にスパッタ法により剥離層を全面成膜する。この剥離層上に、オーバーコート層をスピンドルコート法などにより塗布し、次いで色変換フィルタ層の上のみを被覆するようにフォトリソグラフィー法などによりバーニングを施す。この仮基板上のオーバーコート層と透明な支持基板上の色変換フィルタ層を図5のように向かい合わせた形で圧着する。この圧力を維持したまま所定の時間保持し、オーバーコート層を硬化させる。この後、エッチング液を用いて剥離層をエッチングし、図6のようにオーバーコート層を色変換フィルタ層に転写する。

【0082】以下に、図2および3を参照して、各カラ

10

20

30

40

50

一有機EL素子の製造方法を具体的に説明する。以下の説明では、複数の画素を有する各有機EL発光素子の形成方法を例に取り説明するが、本発明は、これに限定されず、一画素の有機EL発光素子の製造方法も含む。

【0083】[有機EL発光素子または有機EL発光素子基板の形成工程]

#### 1. 第一の実施形態の製造方法

色変換フィルタ基板の最外層をなすオーバーコート層5の上面にスパッタ法などにより透明電極を全面成膜する。この透明電極上にレジスト剤を塗布した後、フォトリソグラフィー法などによりパターンニングを行い、それぞれの色の発光部に位置するストライプパターンからなる透明電極(陽極)6を得る。

【0084】次いで、陽極を形成した基板を抵抗加熱蒸着装置などを用いて、正孔注入層7、正孔輸送層8、有機発光層9、電子注入層10を、真空を破らずに順次成膜する。

【0085】この後、陽極のラインと垂直なストライプパターンが得られるマスクを用いて第二電極(陰極)11を真空を破らずに形成する。

【0086】こうして得られた有機発光素子をグローブボックス内で、乾燥窒素雰囲気下において、封止ガラスとUV硬化接着剤を用いて封止する。

【0087】次に、第一の実施形態の製造方法に係るカラー有機EL素子の構成要素およびカラー有機EL素子に関して詳細に説明する。なお、本発明では、上記の色変換フィルタ基板をその構成要素とする。したがって、色変換フィルタ基板の構成要素および構成は、先に説明したとおりである。

【0088】本発明の第一の実施形態のカラー有機EL素子は、上記第一の発明の色変換フィルタ層と、有機EL発光素子とを備える。すなわち、第一の実施形態のカラー有機EL素子は、有機EL発光素子から発せられる近紫外から可視領域の光、好ましくは青色から青緑色領域の光を、上記色変換フィルタ層に入射し、この色変換フィルタ層から、入射光とは異なる波長の可視光を出力させるようにしたカラー有機EL素子である。

【0089】有機EL発光素子は、一对の電極の間に有機発光層を挟持し、必要に応じ、正孔注入層や電子注入層を導入した構造を有する。具体的には、有機EL発光素子は下記のような層構造を用いることができる。

- (1) 陽極／有機発光層／陰極
- (2) 陽極／正孔注入層／有機発光層／陰極
- (3) 陽極／有機発光層／電子注入層／陰極
- (4) 陽極／正孔注入層／有機発光層／電子注入層／陰極
- (5) 陽極／正孔注入層／正孔輸送層／有機発光層／電子注入層／陰極

上記の層構造において、陽極および陰極の少なくとも一方は、有機EL発光素子の発する光の波長域において透

17

明であることが望ましい。この透明な電極を通して上記の色変換フィルタ基板に光が入射する。

【0090】上記各層の材料としては、公知のものが使用される。例えば、有機発光層としては、青色から青緑色の発光を得るために、例えはベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系、ベンゾオキサゾール系などの蛍光増白剤、金属キレート化オキソニウム化合物、スチリルベンゼン系化合物、芳香族ジメチリディン系化合物などが好ましく使用される。この他の層についても、従来から使用される化合物を用いればよい。

【0091】次に、図2を参照して、第一の実施形態のカラー有機EL素子の一例を詳細に説明する。図2は、第一の実施形態のカラー有機EL素子の構造の一部を示す概略断面図である。すなわち、図2は、マルチカラーまたはフルカラーの表示素子として使用するための複数の画素を有するカラー有機ELディスプレイの1つの画素に相当する部分を示している。有機発光体層は、上記オーバーコート層5上にパターン形成されたインジウムスズ酸化物(ITO)などの透明電極である陽極6と、この陽極を覆う正孔注入層7とこの正孔注入層上に形成された正孔輸送層8と、この正孔輸送層上に形成された有機発光層9と、この有機発光層上に形成された電子注入層10と、この電子注入層上に形成された、アルミニウムのような金属電極などからなる陰極11(第二電極)とで構成されている。

【0092】本発明の方法で製造されるカラー有機EL素子は、上記オーバーコート層5を有する。このオーバーコート層は、透明な支持基板側とは反対側の表面が平滑であり、且つ、色変換フィルタ内に含まれる水分の拡散などが起こらないように、ガスバリア性の高い、十分な密封性を有していることを特徴とする。

【0093】カラー有機EL素子は、オーバーコート層の表面が十分に平坦であることが求められる。したがって、この点においても、オーバーコート層の平坦性に優れる本発明で製造されるオーバーコート層を用いることは有利である。

【0094】本発明のオーバーコート層を用いることにより、平坦性が確保されるので、水分の拡散などが防止できる。

#### 【0095】2. 第二の実施形態の製造方法

図3を参照して第二の実施形態の製造方法を説明する。なお、図3は、トップエミッション方式のTFTカラー有機EL素子の構造の一部を示す概略断面図である。すなわち、図3は、本発明のTFT型のカラー有機EL素子の一例であるが、マルチカラーまたはフルカラーディスプレイとして使用するための複数の画素を有するTFT型の有機EL素子の1つの画素に相当する部分の概略断面図である。図3に示されるTFTカラー有機EL素子は、上記の色変換フィルタ基板と単色の有機EL発光素子基板を貼り合わせたトップエミッション方式のカラ

18

ー有機EL素子である。本発明では、トップエミッション方式のみならず、TFT側から光を取り出す通常の方式のカラー有機EL素子も可能である。

【0096】本発明の製造方法では、有機EL発光素子基板を製造する。そして上記の第一の発明に従って、色変換フィルタ基板を製造する。次いでこれらを貼り合わせる。

【0097】上述のように、色変換フィルタ基板の製造方法は先に説明したとおりであるので、ここでは説明を省略する。

【0098】まず、図3に示されるように、基板14にボトムゲート型のTFTを形成し、第一電極(例えはこの図の場合陽極)17にTFTのソースを接続する。

【0099】この基板上に、アクリル樹脂のような樹脂をスピンドルコート法などにより塗布し、フォトリソグラフィー法などにより、支柱を隣接する陽極の間に形成する。この支柱により、有機EL発光素子基板と色変換フィルタ基板との接触が回避される。

【0100】次に、第一電極17の上に、正孔注入層20、正孔輸送層7、有機発光層9、電子注入層10を抵抗加熱蒸着装置などで成膜する。この後、メタルマスクを用いて、透明な第二電極(この図の場合陰極)18を、真空を破らずに形成する。

【0101】透明な第二電極18は、陰極である場合、電子注入に必要な仕事関数の小さな金属(例えはMg/Ag)を共蒸着法などにより成膜し、その上にIZO膜をスパッタリング法などで成膜することにより作成することができる。

【0102】なお、第一電極を陽極として用いる場合、陽極17には、TFT上の絶縁膜に形成されたコンタクトホールを介してソースに接続されているA1を下部に形成し、その上部表面にIZO(InZnO)を形成してもよい。ここで、A1は、発光層からの発光を反射してトップから効率よく光を放出すること、および、電気抵抗を低減するために設ける。上部のIZOは、仕事関数が高く、効率よくホールを注入するために設ける。

【0103】ここで、本発明者らの研究によれば、例えは正孔注入層、正孔輸送層、有機発光層および電子注入層から構成される4層構造の有機薄膜層を具備し、これ

が第一電極(陽極)および第二電極(陰極)に挟持されている有機EL発光素子を用いた場合、ダークスポットの成長の主原因は、次のように考えられた。すなわち、この有機薄膜層へ水分や溶剤が拡散し、この有機薄膜層を構成する分子が動作温度下で凝集や結晶化を起こし、これによって、この有機薄膜層と、第一電極(陽極)または第二電極(陰極)との密着性が低下し、最終的に、第一電極(陽極)と第二電極(陰極)間の距離が増大するため、ダークスポットが成長すると考えられた。

【0104】したがって、上記のような有機EL発光素子を用いる場合には、本発明の十分な密封性を有してい

19

るガスバリア性の高いオーバーコート層を用いることは有益である。

【0105】また、カラー有機EL素子は、トップエミッション方式を採用するものを含め、オーバーコート層の表面が十分に平坦であることが求められる。したがって、この点においても、オーバーコート層の平坦性に優れる本発明のオーバーコート層を用いることは有益である。

【0106】次に、第二の実施形態の製造方法で製造される有機EL素子について説明する。

【0107】図3に示されるように、このカラー有機EL素子は、基板14にボトムゲート型のTFTを有し、その上に第一電極17を設けられている。この第一電極17にTFTのソースが設けられている。本発明では、図3に示されるように、カラー有機EL素子の隣接する第一電極の間に支柱16設けることが好ましい。この第一電極17の上に、正孔注入層7、正孔輸送層8、有機発光層9、電子注入層10(図3では、7~10で表した有機発光層として一層で示した)が設けられている。さらに、有機発光層上に、透明な第二電極18が設けられている。

【0108】なお、本発明では、上記第一電極は、陽極または陰極として構成することができ、第二電極も陽極または陰極として構成することができる。

【0109】本発明では、以下に示す第一電極および第二電極を用いることができる。

#### 【0110】第一電極

第一電極は、TFTそれぞれに対応して、平坦化絶縁膜上に形成され、TFTのソース電極またはドレン電極と接続される。ソース電極と接続される場合は陽極として機能し、ドレン電極と接続される場合は陰極として機能する。

【0111】TFTと第一電極17とは、平坦化絶縁膜内に設けられたコンタクトホールに充填された導電性アラグによって接続される。導電性アラグは、第一電極と一緒に形成されてもよいし、あるいは金、銀、銅、アルミニウム、モリブデン、タンクステンなどの低抵抗の金属類を用いて形成されてもよい。

【0112】第一電極を陽極として用いる場合、正孔の注入を効率よく行うために、仕事関数が大きい材料が用いられる。特に通常のカラー有機EL素子では、陽極を通して光が放出されるために陽極が透明であることが要求され、ITO等の導電性金属酸化物が用いられる。トップエミッション方式では透明であることは必要ではないが、ITO、IZOなどの導電性金属酸化物を用いて第一電極17を形成することができる。さらに、ITOなどの導電性金属酸化物を用いる場合、その下に反射率の高いメタル電極(A1, Ag, Mo, Wなど)を用いることが好ましい。このメタル電極は、導電性金属酸化物より抵抗率が低いので補助電極として機能すると同時に

20

に、有機EL層にて発光される光を色変換フィルタ側に反射して光の有効利用を図ることが可能となる。

【0113】第一電極を陰極として用いる場合、仕事関数が小さい材料であるリチウム、ナトリウム等のアルカリ金属、カリウム、カルシウム、マグネシウム、ストロンチウムなどのアルカリ土類金属、またはこれらのフッ化物等からなる電子注入性の金属、他の金属との合金や化合物を用いられる。前述と同様に、その下に反射率の高いメタル電極(A1, Ag, Mo, Wなど)を用いてもよく、その場合には低抵抗化および反射による有機発光層の発光の有効利用を図ることができる。

#### 【0114】第二電極

第二電極18は、有機発光層に対して効率よく電子または正孔を注入することとともに、有機発光層の発光波長域において透明であることが求められる。第二電極18は、波長400~800nmの光に対して50%以上の透過率を有することが好ましい。

【0115】第二電極18を陰極として用いる場合、その材料は、電子を効率よく注入するために仕事関数が小さいことが求められる。さらに、有機発光層の発する光の波長域において透明であることが必要とされる。これら2つの特性を両立するために、本発明において第二電極を複数層からなる積層構造としてもよい。一般に、仕事関数の小さい材料は、透明性が低いので、このようにすることは有効である。例えば、有機発光層と接触する部位に、リチウム、ナトリウム等のアルカリ金属、カリウム、カルシウム、マグネシウム、ストロンチウムなどのアルカリ土類金属、またはこれらのフッ化物等からなる電子注入性の金属、他の金属との合金や化合物の

極薄膜(10mm以下)を用いることができる。これらの仕事関数の小さい材料を用いることにより効率のよい電子注入を可能とし、さらに極薄膜とすることによりこれら材料による透明性低下を最低限とすることが可能となる。この極薄膜の上には、ITOまたはIZOなどの透明導電膜を形成する。これらの導電膜は補助電極として機能し、第二電極全体の抵抗値を減少させ有機発光層に対して充分な電流を供給することを可能にする。

【0116】第二電極18を陽極として用いる場合、正孔注入効率を高めるために仕事関数の大きな材料を用いる必要がある。また、有機発光層からの発光が第二電極を通過するために透明性の高い材料を用いる必要がある。したがって、この場合にはITOまたはIZOのような透明導電性材料を用いることが好ましい。

【0117】本発明は、上記のようなトップエミッション方式のみならず、TFTが形成されている側に光を取り出す方式であってもよい。

【0118】[貼り合わせ工程] 第一の発明で得られた色変換フィルタ基板と、上記のようにして得られた有機EL発光素子基板をグローブボックス内で、乾燥窒素雰囲気下においてUV硬化性の封止樹脂19を用いて封止

21

する。具体的には、色変換フィルタ基板のオーバーコート層側と、有機EL発光素子基板の第二電極側とを、支柱15を介して接合し、外周を外周封止層により封止する。封止には、従来の方法（例えば、接着剤による接着など）を用いることができる。

【0119】上述のように、本発明によれば、複数の画素を有する有機EL発光素子を製造することができるが、例えば、色変換フィルタ層の形成、有機EL発光素子基板の形成などにおいて、パターンニングを1画素のパターンで形成することにより、1画素からなる有機EL素子を製造することが可能である。

【0120】本発明のカラー有機EL素子は、イメージセンサ、パーソナルコンピュータ、ワードプロセッサー、テレビ、ファクシミリ、オーディオ、ビデオ、カーナビゲーション、電機卓上計算機、電話機、携帯端末機並びに産業用の計器類のような各種機器のディスプレイに適用することができる。

【0121】

【実施例】以下に、実施例により本発明をさらに詳細に説明する。

【0122】まず、色変換フィルタ基板上有機EL発光素子を積層した有機EL素子に本発明の製造方法を適用した場合の例を説明する。以下の実施例では、適宜、図面および参照符号を参照して説明する。

【0123】実施例1

【1. 青色フィルタの作製】青色フィルタ材料（富士ハントエレクトロニクスティクノロジー製：カラーモザイクCB-7001）を透明な支持基板1としてのコーニング社製のガラス（ノンアルカリガラスであるコーニング1737ガラス）上に、スピンドル法を用いて塗布し、フォトリソグラフィー法によりパターンニングを実施し、青色フィルタ4の線幅0.1mm、ピッチ0.33mm、膜厚10μmのラインパターンを得た。

【0124】【2. 緑色変換フィルタの作製】蛍光色素としてクマリン6（0.7重量部）を溶剤のプロピレングリコールモノエチルアセテート（PGMEA）120重量部へ溶解させた。光重合性樹脂の「V259PA/P5」（商品名、新日鐵化成工業株式会社）100重量部を加えて溶解させ、塗布液を得た。この塗布溶液を、青色フィルタのラインパターンが形成済である、透明な支持基板1上に、スピンドル法を用いて塗布し、フォトリソグラフィー法によりパターンニングを実施し、緑色変換フィルタ3の線幅0.1mm、ピッチ0.33mm、膜厚10μmのラインパターンを得た。

【0125】【3. 赤色変換フィルタ層の作製】蛍光色素としてクマリン6（0.6重量部）、ローダミン6G（0.3重量部）、ベーシックバイオレット11（0.3重量部）を溶剤のプロピレングリコールモノエチルアセテート（PGMEA）120重量部へ溶解させた。光重合性樹脂の「V259PA/P5」（商品名、新日鐵

22

化成工業株式会社）100重量部を加えて溶解させ、塗布液を得た。この塗布溶液を、青色フィルタおよび緑色変換フィルタのラインパターンが形成済である、透明な支持基板1上に、スピンドル法を用いて塗布し、フォトリソグラフィー法によりパターンニングを実施し、赤色変換フィルタ2の線幅0.1mm、ピッチ0.33mm、膜厚10μmのラインパターンを得た。

【0126】【4. オーバーコート層の作製】仮基板12であるコーニング社製のガラス（ノンアルカリガラスであるコーニング1737ガラス）上にスパッタ法により剥離層13としてInZnOを全面成膜した。この膜厚1μmの剥離層13の上に、オーバーコート層5として、アクリル系の透明樹脂（NN810：JSR社製）をスピンドル法により膜厚10μmで塗布し、次いで、色変換フィルタ層の上のみを被覆するようにフォトリソグラフィー法によりパターンニングを実施した。この仮基板12上のオーバーコート層5と透明な支持基板1上の色変換フィルタを図5のように向かい合わせた形で80℃、0.5kgW/cm<sup>2</sup>の条件で圧着した。この圧力を維持したまま160℃で30分保持し、オーバーコート層5を硬化させた。この後、塩酸を用い剥離層13をエッチングし、図6のようにオーバーコート層5を色変換フィルタ層上に転写した。図には特に示していないが、転写後、スパッタ法にてSiN<sub>x</sub>を300nm堆積させ、第二オーバーコート層を形成した。得られたオーバーコート層（積層）の色変換フィルタ層上での膜厚は5.2μm、表面の最大高低差は0.2μmであった。この時、色変換フィルタ層のパターンは変形がなかった。

【0127】【5. 有機EL発光素子の作製】図2に示すように、上記のようにして製造した色変換フィルタ基板の上に、陽極6/正孔注入層7/正孔輸送層8/有機発光層9/電子注入層10/陰極11の6層を形成した。

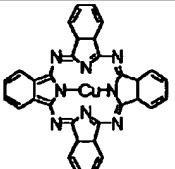
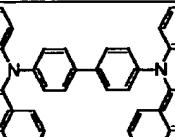
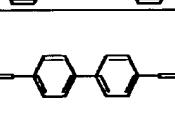
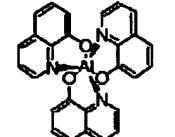
【0128】まず、フィルタ部の最外層をなすオーバーコート層5の上面にスパッタ法により透明電極（ITO）を全面に成膜した。ITO上にレジスト剤「OFR P-800」（商品名、東京応化製）を塗布した後、フォトリソグラフィー法によりパターンニングを行い、それぞれの色の発光部に位置する、幅0.094mm、間隙0.016mm、膜厚100nmのストライプパターンからなる陽極6を得た。

【0129】次いで、前記陽極を形成した基板1を抵抗加熱蒸着装置内に装着し、正孔注入層7、正孔輸送層8、有機発光層9、電子注入層10を、真空を破らずに順次成膜した。表1は各層に用いた材料の構造式である。

【0130】

【表1】

表1

層構成	材料名	構造式
正孔注入層	銅フタロシアニン	
正孔輸送層	4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル	
有機発光層	4, 4'-ビス(2, 2'-ジフェニルビニル)ビフェニル	
電子輸送層	トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム錯体	

【0131】成膜に際して真空槽内圧は $1 \times 10^{-4}$ Paまで減圧した。正孔注入層7は銅フタロシアニン(CuPc)を100nm積層した。正孔輸送層8は4, 4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル( $\alpha$ -NPD)を20nm積層した。有機発光層9は4, 4'-ビス(2, 2'-ジフェニルビニル)ビフェニル(DPVBi)を30nm積層した。電子注入層10はアルミキレート(A1q)を20nm積層した。

【0132】この後、陽極(ITO)6のラインと垂直に幅0.30mm、空隙0.03mmギャップのストライプパターンが得られるマスクを用いて、厚さ200nmのMg/Ag(10:1の重量比率)層からなる陰極11を、真空を破らずに形成した。

【0133】こうして得られた有機EL発光素子をグループボックス内で、乾燥窒素雰囲気(酸素および水分濃度ともに10ppm以下)下において、封止ガラス(図示せず)とUV硬化接着剤を用いて封止した。

#### 【0134】実施例2

オーバーコート層(積層)の色変換フィルタ層上の膜厚が8.1mmである以外は実施例1と同様にカラー有機EL素子を製造した。また表面の最大高低差は0.3μmであった。

#### 【0135】比較例1

オーバーコート層(積層)の色変換フィルタ層上の膜厚が11.8μmである以外は実施例1と同様にカラー有機EL素子を製造した。また表面の最大高低差は0.1μmであった。

#### 【0136】比較例2

\*オーバーコート層5を色変換フィルタ層上にスピンドロート法で直接形成した以外は実施例1と同様にカラー有機EL素子を製造した。本例のオーバーコート層(積層)の色変換フィルタ層での膜厚は、実施例1とほぼ同じになるように調整し、5.3μmであった。また表面の最大高低差は1.8μmであった。

【0137】次に、色変換フィルタ基板と有機発光素子基板を貼り合わせたトップエミッション方式のカラー有機EL素子に本発明の製造方法を適用した場合の例を、図面を参照しながら説明する。図3は、トップエミッション方式のカラー有機EL素子の断面図の一例を示したものである。

#### 【0138】実施例3

[1. 色変換フィルタ層] 色変換フィルタ層は、実施例1の1~4と同様の方法で作製し、オーバーコート層(積層)の色変換フィルタ層上の膜厚は5.2μm、表面の最大高低差は0.3μmであった。

【0139】[2. 有機EL発光素子] 図3に示すように、基板14としてのコーニング社製のガラス(ノンアルカリガラスであるコーニング1737ガラス)にポトムゲート型のTFTを形成し、陽極17にTFTのソースが接続されている構成とした。

【0140】陽極17は、図には示されていないがTFT上の絶縁膜に形成されたコンタクトホールを介してソースに接続されているA1が下部に形成され、その上部表面にIZO(InZnO)が形成されている。

【0141】A1は、発光層からの発光を反射してトップから効率よく光を放出すること、および、電気抵抗を

\*50 低減するために設ける。A1膜の厚さは300nmとし

た。上部のIZOは、仕事面数が高く、効率よくホールを注入するために設ける。IZOの厚さは200nmとした。

【0142】この基板上に、アクリル樹脂（商品名JN PC-48、JSR製）をスピンドルコートにより塗布し、フォトリソグラフィー法により、隣接する陽極間に直径10μm、高さ3.5μmの支柱16を形成した。

【0143】前記陽極17の上に、正孔注入層7、正孔輸送層8、有機発光層9、電子注入層10を実施例1の5と同様の方法で成膜した。この後、メタルマスクを用いて、透明な陰極18を、真空を破らずに形成した。

【0144】透明な陰極18は、電子注入に必要な仕事面数の小さな金属Mg/Agを共蒸着法により膜厚2nmで成膜し、その上にIZO膜をスパッタリング法で膜厚200nm成膜することにより形成した。

【0145】[3. 貼り合わせ] こうして得られた色変換フィルタ基板と有機発光素子基板をグローブボックス内乾燥窒素雰囲気（酸素および水分濃度ともに10ppm以下）下においてUV硬化の封止樹脂19を用いて封止した。二つの基板は支柱、封止樹脂以外で接触することなく封止状態も良好であった。

#### 【0146】評価

\* 実施例と比較例のオーバーコート層の膜厚、表面の最大高低差、ターカスポットの数、視野角の良否を表2に示す。  
【0147】最大高低差は表面粗さ計でオーバーコート層表面の段差を図1の色変換フィルタ2、3、4の上を横切るように300μm測定し算出した。ターカスポットの計数は駆動周波数60Hz、デューティ1/60、1画素当たりの電流量2mAで100時間の連続駆動後にいった。視野角の特性は、ゴニオステージに固定したパネルを、各原色の単色点灯状態、すなわち赤色画素のみ全点灯、緑色画素のみ全点灯、そして、青色画素のみ全点灯、とし、パネル法線の角度を0°とし上下左右にそれぞれ80°までパネルを回転させ、暗室下で色度(CIE-x, CIE-y)の角度依存性を測定した。測定にはスペクトロメータ(MCPD-1000:大塚電子製)を用いた。0°の、各原色の単色色度に対して、上下左右各々80°の範囲でのCIE-x値およびCIE-y値の最大の変化△が、0.05未満であるものを良好、それ以外を不良と判定した。

#### 【0148】

#### 【表2】

表2. 実施例・比較例の評価結果				
試料	膜厚 (μm)	最大高低差 (μm)	ターカスポット数 (個/cm²)	視野角の特性
実施例1	5.2	0.2	0.6	良好
実施例2	8.1	0.3	0.5	良好
比較例1	11.8	0.1	0.5	不良
比較例2	5.3	1.8	2.1	良好
実施例3	5.2	0.3	0.2	良好

【0149】測定の結果、実施例の効果が確認された。

#### 【0150】

【発明の効果】本発明によれば、本発明のオーバーコート層を具備した色変換フィルタ基板は、ターカスポットの発生し難い基板となる。また、この基板を用いることにより、長期にわたって安定した発光特性を維持するカラー有機EL素子および色変換カラー有機ELディスプレイの提供が可能となる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の色変換フィルタ基板の概略断面図である。

【図2】本発明のカラー有機EL素子の概略断面図である。

【図3】本発明の別の実施形態のカラー有機EL素子の概略断面図である。

【図4】本発明の色変換フィルタ基板の製造工程を表す概略図である。

【図5】本発明の色変換フィルタ基板の製造工程を表す概略図である。

【図6】本発明の色変換フィルタ基板の製造工程を表す※50

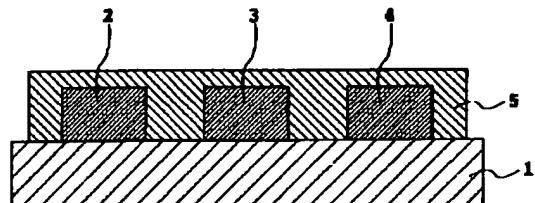
\* 概略図である。

#### 【符号の説明】

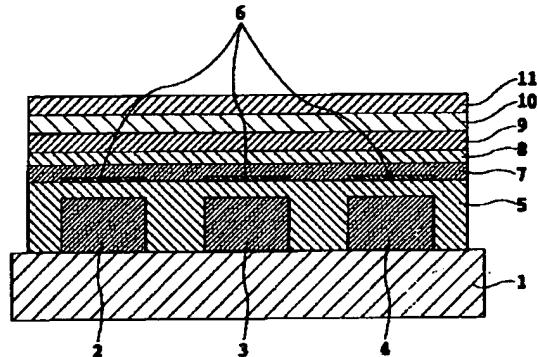
- 1 透明な支持基板
- 2 赤色変換フィルタ
- 3 緑色変換フィルタ
- 4 青色変換フィルタ
- 5 オーバーコート層
- 6 透明電極(陽極)
- 7 正孔注入層
- 8 正孔輸送層
- 9 有機発光層
- 10 電子注入層
- 11 陰極
- 12 仮基板
- 13 剥離層
- 14 基板
- 15 TFT
- 16 支柱
- 17 第一の電極
- 18 第二の電極

## 19 外周封止層

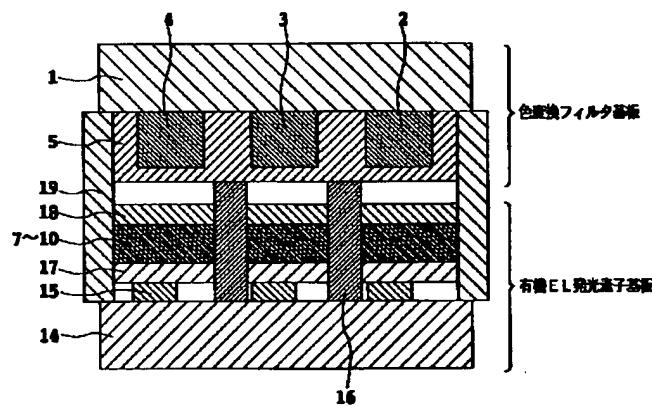
【図1】



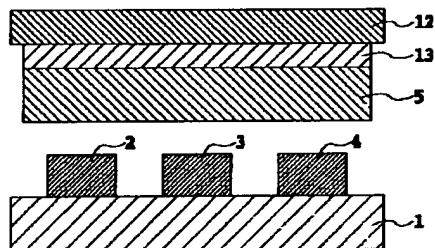
【図2】



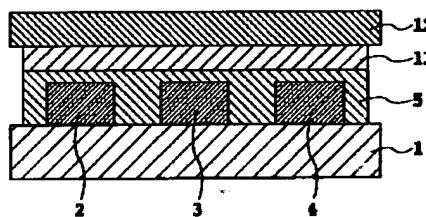
【図3】



【図4】



【図5】



【図6】

